

三代核电接管安全端异种金属焊接接头的显微表征*

丁杰^{1,2)} 张志明^{1,2)} 王俭秋^{1,2)} 韩恩厚^{1,2)} 唐伟宝^{3,4)} 张茂龙^{3,4)} 孙志远^{3,4)}

1) 中国科学院金属研究所核用材料与安全评价重点实验室, 沈阳 110016

2) 中国科学院金属研究所辽宁省核电材料安全与评价技术重点实验室, 沈阳 110016

3) 上海电气核电设备有限公司, 上海 201306

4) 上海核电装备焊接及检测工程技术研究中心, 上海 201306

摘要 利用 OM, TEM, SEM, 显微硬度仪, AFM, 磁力显微镜(MFM)和扫描 Kelvin 探针(SKPFM)等微观分析手段, 分析了先进压水堆核电站反应堆压力容器安全端异种金属焊接接头低合金钢 A508/镍基焊料 52M/奥氏体不锈钢 316L 的金相组织、显微硬度、主要合金元素、晶界类型以及残余应变的分布, 并对比了整个焊接接头不同厚度上的组织和性能. 结果表明, 焊缝厚度方向上组织和硬度没有显著差别, 底焊位置出现一层未熔焊料形成的细小等轴晶, 在 316L 母材热影响区(HAZ)内残余应变较焊接件其它位置高, 熔合线附近具有复杂的微观结构、显微硬度、晶界类型、元素成分和残余应变分布. TEM 和 MFM 分析表明, 母材 316L 基体内有富 Cr, Mo 元素的颗粒状析出相, SKPFM 的结果显示该析出相 Volta 电势较基体更负, 因而更耐腐蚀.

关键词 异种金属焊接, 显微结构, 显微硬度, 成分分布, 晶界类型, 残余应变

中图法分类号 TG113

文献标识码 A

文章编号 0412-1961(2015)04-0425-15

MICRO-CHARACTERIZATION OF DISSIMILAR METAL WELD JOINT FOR CONNECTING PIPE-NOZZLE TO SAFE-END IN GENERATION III NUCLEAR POWER PLANT

DING Jie^{1,2)}, ZHANG Zhiming^{1,2)}, WANG Jianqiu^{1,2)}, HAN En-Hou^{1,2)}, TANG Weibao^{3,4)},
ZHANG Maolong^{3,4)}, SUN Zhiyuan^{3,4)}

1) Key Laboratory of Nuclear Materials and Safety Assessment, Institute of Metal Research, Chinese Academy of Sciences, Shenyang 110016

2) Liaoning Key Laboratory for Safety and Assessment Technique of Nuclear Materials, Institute of Metal Research, Chinese Academy of Sciences, Shenyang 110016

3) Shanghai Electric Nuclear Power Equipment Co. Ltd., Shanghai 201306

4) Shanghai Research Center for Weld and Detection Engineering Technique of Nuclear Equipment, Shanghai 201306

Correspondent: WANG Jianqiu, professor, Tel: (024)23893723, E-mail: wangjianqiu@imr.ac.cn

Supported by National Basic Research Program of China (No.G2011CB610502) and National Science and Technology Major Project (No.2011ZX06004-009)

Manuscript received 2014-06-06, in revised form 2014-10-12

ABSTRACT The dissimilar metal weld joint (DMWJ) in primary water system of pressurized water reactors (PWRs) has been proven to be a vulnerable component owing to its proneness to different type of flaws. Thus,

* 国家重点基础研究发展计划项目 G2011CB610502 和国家科技重大项目 2011ZX06004-009 资助

收到初稿日期: 2014-06-06, 收到修改稿日期: 2014-10-12

作者简介: 丁杰, 男, 1990 年生, 硕士生

DOI: 10.11900/0412.1961.2014.00299

maintaining integrity of such joint in case of defect presence is of great importance to the design and safe management of nuclear power plants (NPPs). For a reliable integrity analysis of DMWJ, it is essential to understand the microscopic characteristics in all regions of the joint. In this work, OM, TEM, SEM, durometer, AFM, MFM and SK-PFM were utilized to investigate the microstructure, micro-hardness and the distribution of main elements, grain boundary characteristic and residual strain in the A508/52M/316L DMWJ that used for connecting the pipe safe-end and the nozzle of reactor pressure vessel in PWRs, and a comparative analysis about the microstructure and property along the radical direction of the DMWJ was obtained. The results showed that there was no region that differed from the other part of the weldment in terms of the microstructure and micro-hardness dramatically. A layer of fine grain resulting from unmelted filler metal was found in the backing weld part of the joint. The residual strain in the heat affected zone (HAZ) of 316L was higher than that in other regions. Meanwhile, drastic variations in the microstructure, chemical composition distribution and grain boundary character distribution (GBCD) in both the 316L/52Mw and the 52Mb/A508 interface regions were observed. The analyses using TEM and MFM test showed that a large number of chromium and molybdenum-rich precipitates particles distributed both along the grain boundaries and inside grains in the 316L base metal, which were identified to be precipitates with complex elementary composition rather than the normal string delta ferrite in 316L austenitic stainless steel. The SKPFM test result indicated that these precipitates were more prone to be corroded than the base metal. Therefore, further investigation about the cause of deformation and the impacts to the corrosion resistance, particularly the stress corrosion cracking (SCC) sensitivity of the precipitates needs to be carried out.

KEY WORDS dissimilar metal welding, microstructure, micro-hardness, chemical composition distribution, grain boundary character, residual strain

压水堆核电站异种焊接接头因其独特的材料学特性而成为一回路水系统中容易失效的部件,其主要损伤及失效形式包括应力腐蚀开裂(SCC)、疲劳裂纹、腐蚀裂纹、热裂纹及未熔合缺陷等。上述缺陷的形成与沿焊接接头力学性能差异、不同材料热膨胀系数及合金元素差异、焊接残余应力、C迁移以及服役环境等因素有关^[1-10]。过去几十年时间里,世界各地的核电站相继报道了大量反应堆一回路水接管安全端的开裂和泄露事故^[1,2],因此,该接头的完整性是保证核电站安全运行的重要前提。已有研究^[3-7]表明,熔合线附近合金元素的扩散、焊缝与母材晶体结构的差异以及焊接热流等导致了该区域的金相组织、显微硬度、晶界类型以及残余应力分布的梯度变化,进而对整个焊接接头的机械性能以及耐蚀性能,尤其是应力腐蚀敏感性产生影响,其中靠近熔合线的狭窄区域比母材和焊缝具有更高的应力腐蚀开裂敏感性。因此对该异种焊接接头,特别是熔合线部位进行详细的显微表征对掌握其在核电站一回路水服役环境下的安全性和稳定性具有重要意义。

三代压水堆核电主要有 AP1000 和 EPR 堆型,国内在 AP1000 基础上发展 CAP1000 及 CAP1400 堆型。其中 AP1000 核电站是由西屋公司研制开发的新一代核电站,也是我国多数在建以及拟建核电站

所选用的堆型,其一回路系统接管安全端焊接所用焊料为 52M 镍基合金,该焊料属于 690 系列镍基合金,由于具有更高的 Cr 含量,因此它比 600 系列镍基合金具有更优异的抗 SCC 性能^[8-10]。国内外已经对该类型异种焊接接头进行了一系列的研究工作。Wang 等^[11]对 A508/52M/316L 异种焊接接头的金相组织、显微硬度、熔合线界面区域成分变化等进行了表征,发现焊缝与母材界面的断裂韧性及裂纹扩展行为均与接头其它部分存在较大差别。Choi 等^[12]利用透射电镜(TEM)和三维原子探针扫描(3D APT)等手段研究了时效处理对低合金钢与镍基合金焊料异种焊接接头熔合线界面显微硬度、成分以及沿晶析出的 Cr 的碳化物的影响。Hou 等^[13]研究了 Inconel 182/A533B 低合金钢异种钢焊接接头过渡区显微组织对焊接件抗应力腐蚀性能的影响。但是这些工作缺乏对整个接头各个显微特征的系统研究。

实现核电站设计施工以及原材料的国产化对我国核能利用摆脱国际同行业的束缚,促进能源的可持续发展具有重要意义。同时,构建一种合乎金属焊接接头的完整性设计和评价的技术方法对于核电站的安全运行至关重要,因为只有得到可靠的安全性评价,才能在检测到接头缺陷或裂纹后作出不维修继续服役、维修后服役或者更换部件的科学决定。然而,之前对该接头的显微表征大多局限于

焊缝的宽度方向,忽略了焊接接头厚度方向上可能存在的结构和性能差异,这不利于全面了解焊接件整体的微观结构、组织成分和性能,在此基础上进行的该焊接接头力学、电化学性能、SCC 敏感性等相关研究结果以及由此得出的安全性能评价可能会与实际情况产生差距。

因此,本工作分析了先进压水堆核电站反应堆压力容器安全端异种金属焊接接头 A508/52M/316L 的金相组织、显微硬度、主要合金元素、晶界类型以及残余应变的分布,并对比了整个焊接接头不同厚度上的组织和性能,以期可以为焊接工艺和焊接接头使役性能的预测与评估提供依据。

1 实验方法

本工作研究对象是国产核电一回路接管安全端异种焊接接头 (dissimilar metal weld joint, DMWJ)。其中,反应堆接管管嘴 (nozzle) 和安全端 (safe-end) 所用材料分别为低合金钢 A508 以及 316L 不锈钢 (stainless steel, SS)。该接头的焊接工艺流程为: 在 A508 管嘴上堆焊约 27 mm 厚的镍基合金 52M 作为隔离层,并进行去应力热处理。最后继续用镍基合金 52M 焊料通过多道焊将管嘴和安全端焊接起来。堆焊层和对接焊缝焊料类型相同,但由于焊料批号和焊接工艺不同,使熔敷金属在 Cr, Ni

合金元素含量上稍有差异,分别记为 52Mb 和 52Mw 以示区别。为避免耐蚀性较差的 A508 与核电站一回路水环境直接接触,通常在 A508 的内壁近端口表面再堆焊约 7 mm 厚的镍基包覆层 (cladding), A508 的内壁其余部分堆焊 308 不锈钢。表 1 为接头各部分的主要合金元素含量。接头截面宏观形貌如图 1a 所示,因样品尺寸较大,故将其从壁厚方向切割成 8 份,取样方式如图 1b 所示,其中位置 1 对应管内壁,位置 8 对应管外壁。

不同区域材料选用不同金相刻蚀液。焊缝及包覆层的刻蚀采用 2 种方法,分别为由 16 g FeCl₃+80 mL HCl+2 mL HNO₃+11 mL H₂O 配制的溶液刻蚀以及 10% 的铬酸水溶液 (质量分数,下同) 电解,电压为 3 V,时间为 20 s; 316LSS 分别用由 5 g CuSO₄+25 mL HCl+25 mL H₂O 制备的刻蚀液刻蚀以及 10% 过硫酸铵水溶液中电解刻蚀 2~3 min,电压 4 V; A508 用 4% 硝酸酒精刻蚀。利用 Observer. Z1m 光学显微镜 (OM) 对整个接头的金相组织进行了观察分析。采用 JEM-2100F 场发射透射电子显微镜 (TEM) 对接头局部区域进行研究。透射电镜样品采用直径 3 mm 小圆片,机械研磨至 50 μm 后凹坑并离子减薄。显微硬度测量在 MHVD-1000AP 显微硬度仪上进行,载荷为 200 g,保压时间 15 s。为反映熔合线附近显微硬度的变化趋势,测量时,靠近熔合线附近

表 1 异种金属焊接件各部分材料的主要合金元素含量

Table 1 Main chemical compositions of different materials in the dissimilar metal weld joint (DMWJ)

(mass fraction / %)										
Material	Cr	Ni	Mo	Mn	Si	Cu	Ti	Nb	C	Fe
316L	17.60	12.42	2.69	1.62	0.65	0.080	—	<0.04	0.028	Bal.
A508	0.14	0.88	0.52	1.39	0.25	0.030	—	—	0.220	Bal.
52Mw	29.52	59.19	0.03	0.78	0.11	0.024	0.20	0.86	0.008	9.03
52Mb	29.70	59.25	0.01	0.82	0.12	0.025	0.22	0.81	0.008	8.88

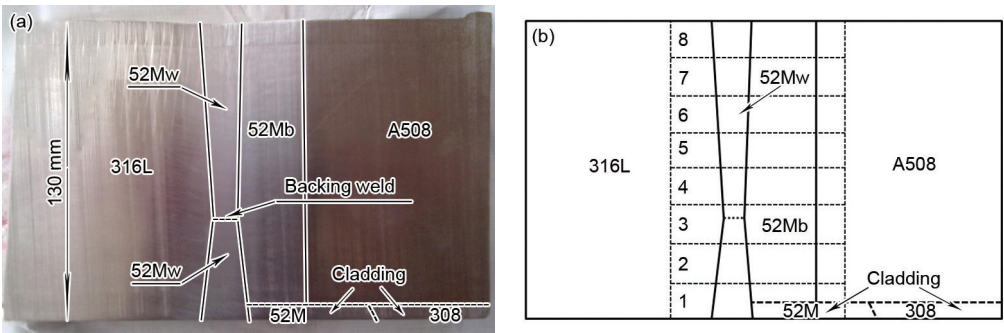


图 1 异种金属焊接件宏观形貌图及取样方案

Fig.1 Macro-morphology (a) and sampling scheme (b) of DMWJ (Positions 1 and 8 represent the inner wall and outer wall of the joint, respectively)

的相邻硬度点之间选取的间距为 150 μm , 而在距熔合线 3 mm 以外的区域相邻 2 硬度点之间的距离则为 500 μm . A508 HAZ 及熔合线界面为整个焊接件抗 SCC 最薄弱的部分^[1], 需要在更小的步长下对该位置进行测量, 因此该区域的测量在外加载荷为 50 g 下进行, 保压时间为 15 s, 相邻硬度点之间的间距为 50 μm . 为确定主要合金元素在接头焊缝熔合线界面的扩散, 利用 XL30-FEG 型环境扫描电镜(ES-EM)的能谱仪(EDS)对熔合线界面附近主要合金元素的分布进行了分析. 扫描步长为 0.42 μm , 每个点停留时间为 2.0 s. 磁力显微镜(MFM)和扫描 Kelvin 探针(SKPFM)测试在 MultiMode IIID 扫描探针显微系统上进行.

用 ESEM 的背散射电子衍射(EBSD)附件, 对焊缝与母材熔合线附近的晶界类型以及残余应变的分布进行了测量. 实验样品先用 2000 号砂纸预磨, 之后抛光并在测量前用酒精超声清洗 30 min. 测量时, 加速电压 15 kV, 数据采集完成后用 OIM 软件对数据进行分析. 在计算相邻 2 点之间的取向差时, 门槛值设为 5°, 即小于此门槛值的点将被默认为存在同一个晶粒内部.

2 结果与讨论

2.1 显微组织

2.1.1 52M 镍基合金焊缝 图 2 为 52M 镍基

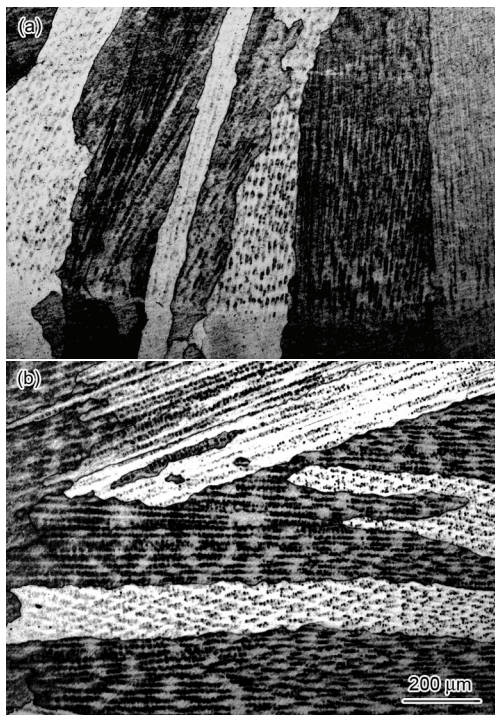


图 2 对接焊缝 52Mw 与堆焊隔离层 52Mb 的组织形貌

Fig.2 OM images of weld alloy 52Mw (a) and buttering alloy 52Mb (b) in the DMWJ

合金焊缝的 OM 像. 由图 2a 可见, 对接焊缝金相组织为柱状晶型的完全奥氏体, 且有呈垂直生长的趋势. 堆焊隔离层 52Mb 与对接焊缝 52Mw 的区别在于晶粒组织为水平生长, 如图 2b 所示. 焊缝部分晶粒生长方向由焊接过程中熔池的冷却方向决定, 且前后 2 个焊道之间晶粒呈明显外延生长.

对整个焊接熔池的金相组织进行观察后发现, 沿焊缝深度方向的金相组织分布较为均匀, 没有出现显著变化. 图 3 是焊缝的宏观金相组织, 其中图 3a 为焊缝中部位置 4 的样品宏观形貌, 可见明显的对接焊缝晶粒垂直生长而堆焊层晶粒水平生长的特点. 在焊接接头的中间区域, 对接焊缝底焊部分(位于位置 3, 距焊缝内壁约 45 mm)出现一层晶粒尺寸细小的等轴晶, 如图 3b 中箭头所示, 研究人员^[4]认为这层等轴晶是由未熔化的焊料堆积形成的.

图 4 为靠近焊接接口的 A508 内壁包覆层显微组织. 由图可见, 该包覆层由 2 层组成, 晶粒均为粗

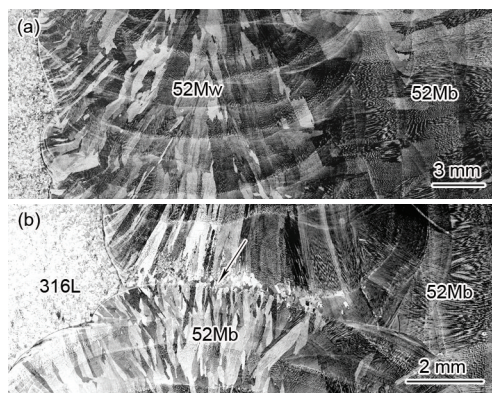


图 3 位置 4 样品焊缝宏观组织与位置 3 样品对接焊缝底焊位置细小等轴晶的 OM 像

Fig.3 OM images of sample in position 4 in the DMWJ weld (a) and the fine equiaxed grains at the backing weld region of sample in position 3 (b) (The arrow in Fig.3b indicates the fine equiaxed grains)

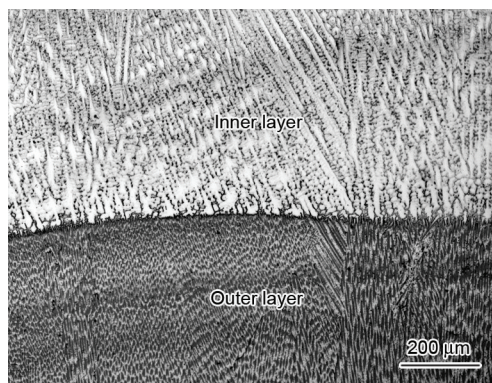


图 4 A508 内壁镍基合金包覆层的 OM 像

Fig.4 OM image of the cladding on the surface of A508 inner wall

大的等轴柱状晶, 相邻晶粒内部组织取向差较大. 由于都是镍基合金焊料, 因此该区域没有出现因成分变化而产生的复杂的显微结构, 且前后2焊道之间呈现出明显的晶粒外延生长.

2.1.2 母材 316L 不锈钢 图 5a 所示为母材 316LSS 的金相组织, 为尺寸较为均匀的等轴退火奥氏体晶粒, 并存在一些孪晶结构. 在近焊缝的热影响区及远离焊缝的基体内均存在大量颗粒状析出相, 其中部分大颗粒析出相聚集形成团簇并在基体中零散分布, 如图 5b 所示. 析出相分 2 种: 其中一种析出相颗粒尺寸较大, 达几个微米, 形状不规则; 另一种则尺寸较小, 只有几百个纳米, 且在基体中的含量明显少于大颗粒析出相的含量. 析出相的 EDS 分析结果表明, 大颗粒与小颗粒析出相 Cr, Mo 的含量分别为 27.23%, 21.91% 以及 11.02%, 19.44%, 均高于基体 316L 中的 Cr, Mo 含量, 相应的, 其 Fe, Ni 含量较母材偏低.

用 CuSO_4 和 HCl 的水溶液刻蚀之后的大颗粒析出相形貌如图 6a 所示, 图 6b 为其 MFM 像. 由图可知, 大颗粒析出相所在区域颜色较基体更浅, 说明该析出物无磁性. 316LSS 正常组织为奥氏体晶粒以及沿晶界析出的 δ 铁素体, 而在室温下具有铁磁性的铁素体在 MFM 处理结果中的颜色应该较无磁性的奥氏体晶粒的颜色要深, 因而可以判断该析出物

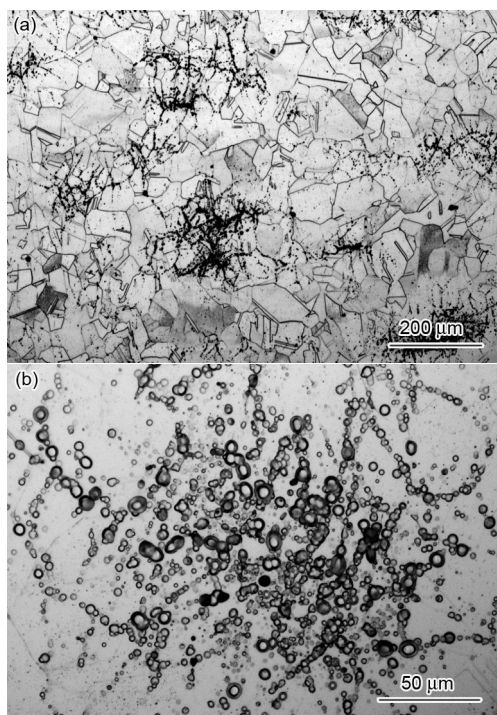


图5 母材 316L 的组织形貌及析出相形态的 OM 像
Fig.5 OM images of 316L base metal (a) and precipitate morphology (b)

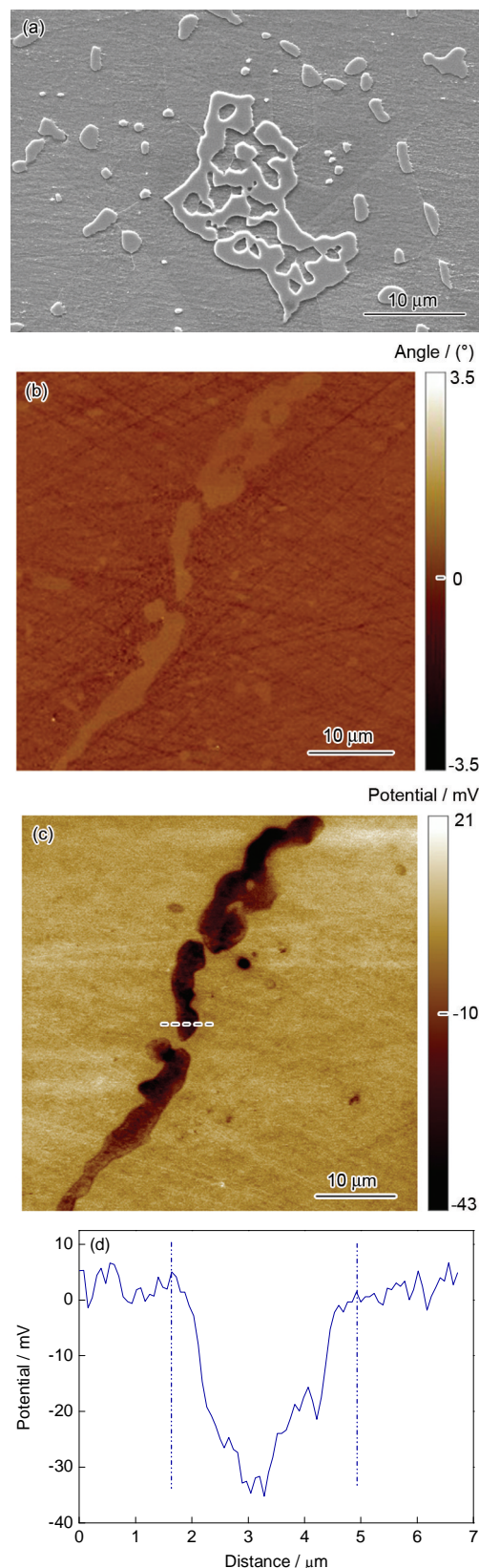


图6 母材 316L 中大颗粒析出相的 SEM 像及 MFM, SK-PFM 分析结果

Fig.6 SEM image (a), MFM image (b) and Volta potential map (c) on the surface area of large precipitate particle in 316L base metal and a Volta potential profile along a line as indicated in Fig.6c (d)

不是 316LSS 中正常析出的铁素体组织. 图 6c 所示 SKPFM 实验结果表明, 大颗粒析出物的 Volta 电势较周围奥氏体母材的 Volta 电势更低, 图中虚线所示电势截面如图 6d 所示, 可见大颗粒析出相与基体的电势差高达 30 mV, 说明该析出相在腐蚀电解质条件下与母材组成的微电池体系中充当阳极, 因而更容易被腐蚀.

研究^[15-18]表明, 当奥氏体不锈钢在 600~1050 °C 回火时铁素体会发生共析反应 $\delta \rightarrow \sigma + \gamma_{\text{new}}$, 生成四方晶格的 σ 相, 该反应可以进行到直至所有铁素体完全转化, 生成的 σ 相的化学组成会随热处理时间和温度而发生改变, 但其整体较 δ 铁素体富 Cr, Mo 元素, 贫 Ni 元素. 在奥氏体不锈钢中, σ 相是常见的中间相之一, 铁素体稳定化元素如 Cr, Mo, Si 会促进 σ 相的形成, 且有研究^[16]结果显示, σ 相的 Volta 电势较 γ 相的要低. 综合其成分、形貌、SKPFM 数据以及以往研究结果, 判断该大颗粒析出相可能为 σ 相. σ 相为硬脆中间相, 对材料的断裂韧性等影响不利, 同时考虑到 316L 在实际服役工况中与核电站第一回路水直接接触, 腐蚀环境十分苛刻, 而 σ 相在 316LSS 内大量分布, 势必会对安全端的耐蚀性能造成影响.

小颗粒析出相的 SEM 和 TEM 像如图 7a 和 b 所示. 可见, 其颗粒尺寸明显小于大颗粒析出相. 其 EDS 分析结果如图 7c 所示, 可知, 在小颗粒析出相周围并未出现明显的贫 Cr, Mo 区. 对电子衍射花样进行标定后发现, 该析出物具有 bcc 结构. 研究^[18-22]表明含 Mo 的奥氏体不锈钢、铁素体不锈钢以及双相钢在 600~900 °C 区间回火时有可能产生一种 bcc 结构的析出相 χ 相, 其空间群为 $I43m$, 晶格常数为 0.892 nm. χ 相具有较宽的化学剂量范围, 其典型分子组成为 $\text{Fe}_{36}\text{Cr}_{12}\text{Mo}_{10}$, 但在实际条件下通常还包含其他合金元素如 Ti, Ni. 结合小颗粒析出相的电子衍射花样分析结果和元素含量后判断该球形小颗粒析出物为具有 $(\text{Fe}, \text{Ni})_{18}\text{Cr}_6\text{Mo}_5$ 分子组成的 χ 相. χ 相同样为脆性相, 对安全端的耐蚀以及力学性能均有不利影响.

图 8 为靠近 316LSS 熔合线的热影响区 (HAZ) 的 OM 像. 可见, 紧挨熔合线部分的晶粒有一定程度的长大, 如箭头所示, 孪晶组织较基体有所减少. 除此之外, 其金相组织与基体没有明显区别, 析出相的分布以及形态也没有因为焊接热输入的影响而发生变化^[23].

2.1.3 母材 A508 低合金钢 A508 低合金钢

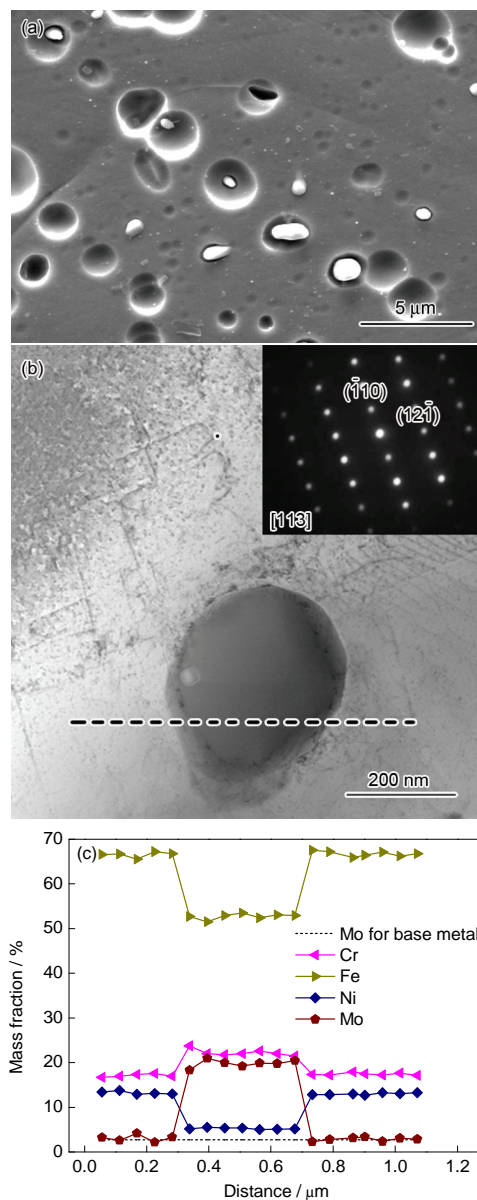


图 7 母材 316L 中小颗粒析出相的 SEM 像、TEM 像和 EDS 分析

Fig.7 SEM image (a), TEM image (b) and EDS line scanning curves in Fig.7b (c) of small precipitate particle in the 316L base metal (The inset in Fig.7b shows the SAED pattern)

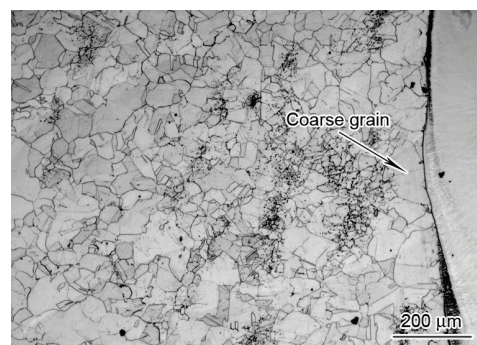


图 8 316LSS 热影响区组织形貌

Fig.8 OM image of the heat affected zone (HAZ) in 316LSS

的金相组织如图9所示。基体为回火贝氏体组织,在羽毛状上贝氏体的基体内含有少量粒状贝氏体。有低C区(图9a)和高C区(图9b)之分,在高C部分粒状贝氏体组织的含量明显增加。

图10为A508低合金钢HAZ的显微组织。可见,HAZ宽度约为2.0~2.5 mm。图10a所示为从52Mb/A508熔合线界面往A508母材方向的组织演变过程,其中实线为热影响区与母材的分界线。热影响区可以细分为如图中用虚线区分的I~IV 4个区

域,分别对应热影响区中的熔合区、粗晶区、细晶区以及回火区。其中I区为紧挨熔合线因脱碳而形成的白亮铁素体,II区所对应铁素体完全转变温度 A_{c3} 以上的区间,原始母材晶粒显著长大,冷却后得到淬火马氏体组织,依据冷却速度和焊接线能量的不同还可能出现贝氏体,从而形成马氏体和贝氏体的混合组织,如图10b中箭头所示。III区对应珠光体转变温度 A_{c1} ~ A_{c3} 温度区间的热影响区,铁素体较少溶入奥氏体,而珠光体、贝氏体和索氏体等则完全转

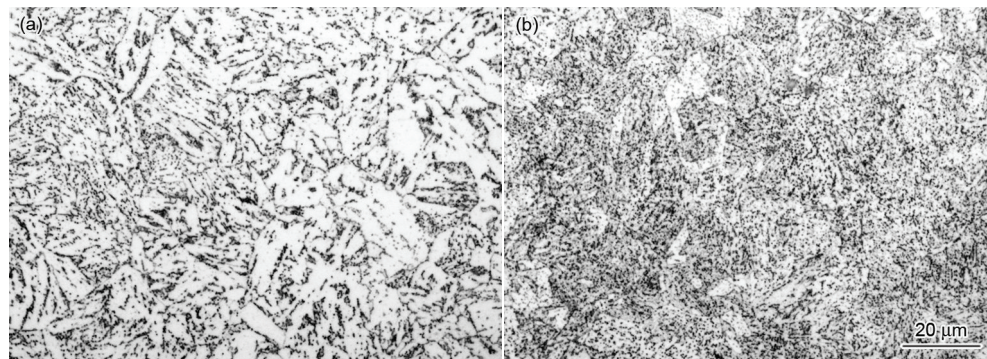


图9 母材A508基体组织形貌

Fig.9 OM images of A508 base metal with low (a) and high (b) carbon contents

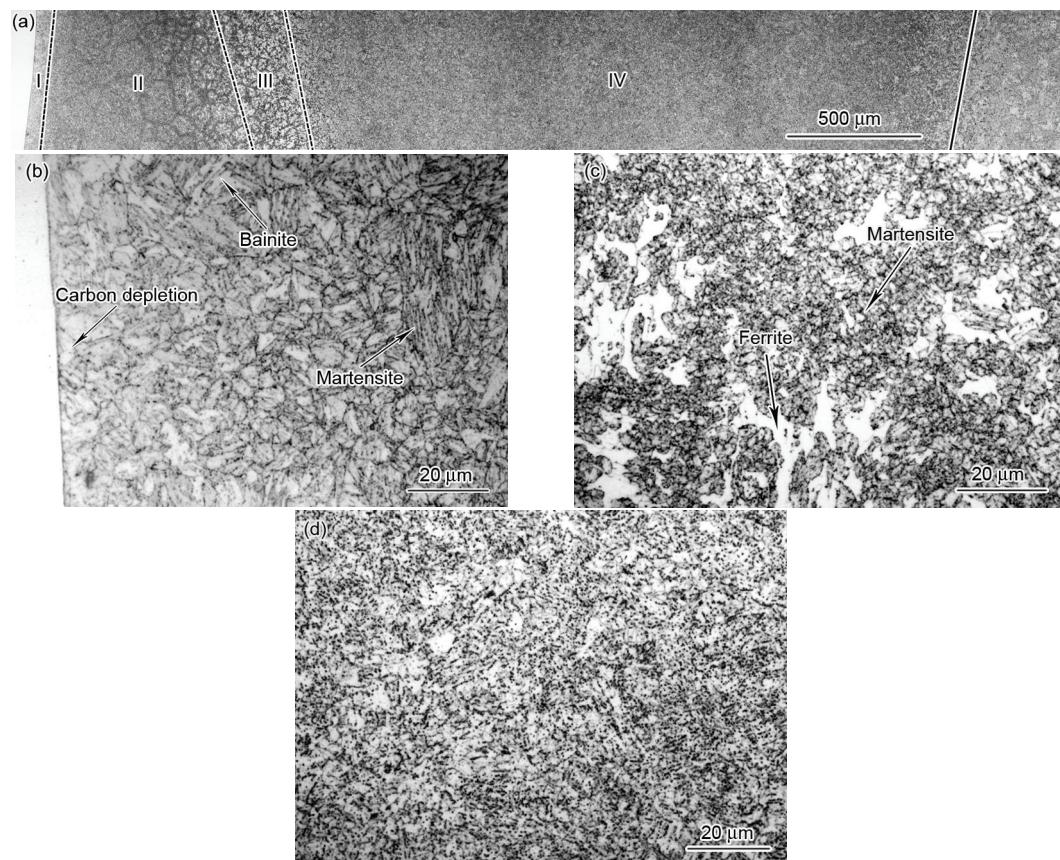


图10 A508热影响区组织形貌

Fig.10 OM images of the HAZ in the A508 (a), fusion zone with ferrite and coarse grain zone with martensite and bainite (b), fine grain zone with ferrite and fine martensite (c) and tempered zone (d) (I—fusion zone, II—coarse grain zone, III—fine grain zone, IV—tempered zone)

化为奥氏体,冷却时,奥氏体转化成细小的马氏体,而原铁素体保持不变并有一定程度的长大,从而形成铁素体+马氏体的混合组织,如图10c所示. IV区则呈现明显的回火组织特征,如图10d所示.

A508与内壁镍基合金包覆层界面一侧热影响区的金相组织与堆焊隔离层熔合线界面一侧组织类似,但是在部分区域,其紧邻熔合线位置为粗大的板条马氏体而不是白亮的铁素体(图11),远离熔合线的区域的组织和HAZ的细晶区以及回火区的组织一致.

2.1.4 316L/52Mw 熔合线界面 图12所示为316L/52Mw 熔合线界面附近的微观形貌. 可见,在316LSS和52Mw焊缝之间出现有一层由细小柱状晶组成的特殊区域. 研究^[24]表明,焊接过程中热流动以及元素的扩散导致该界面部分形成不同于母材和焊缝内部的复杂微结构,由于母材和焊缝金属融化温度的不同,在熔合线界面附近通常会出现焊接未熔合区(unmixed zone, UZ). 该未熔合区并未在整个熔合线上连续分布,而且在焊缝不同厚度该区域的宽度也不一样. 52Mw焊缝一侧的微结构为过渡取向的奥氏体柱状晶,由316LSS晶粒外延生长而成.

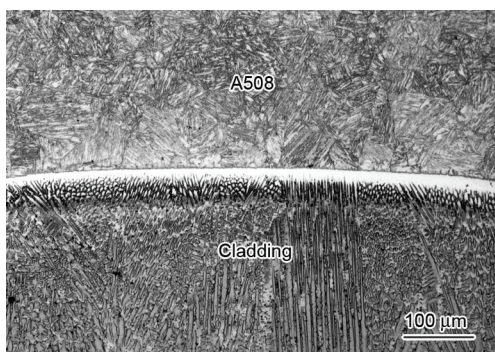


图11 A508与内壁包覆层接触部分热影响区的组织形貌
Fig.11 OM image of A508 HAZ adjacent to the cladding in the inner wall

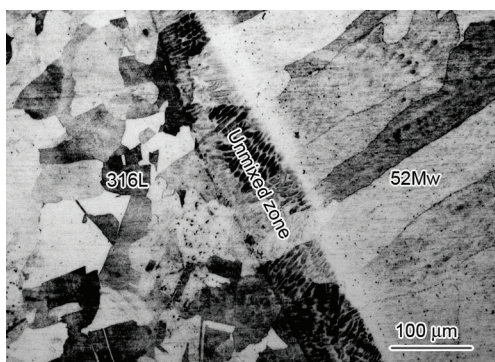


图12 316L/52Mw 熔合线界面组织形貌
Fig.12 Microstructure of 316L/52Mw fusion boundary and the unmixed zone

2.1.5 52Mb/A508 熔合线界面 图13为52Mb/A508 熔合线附近的微观形貌,在52Mb与A508之间存在因成分过渡导致的白亮过渡区(transition zone, TZ),如图13a所示,表明在该刻蚀体系下过渡区较2侧母材和焊缝更耐蚀刻. 部分区域还存在异种金属焊接特有的Type-I和Type-II晶界,如图13b所示. Type-II晶界平行于熔合线界面,而Type-I晶界为连接熔合线界面与Type-II晶界的边界. 研究^[25-28]表明,这种晶界的形成与焊缝和母材晶体结构的差异以及熔合线两侧成分的急剧变化有关,其中Type-I晶界由母材晶界外延生长而成^[25,29],且Type-I和Type-II晶界均为高角度晶界,比熔合线有更高的应力腐蚀开裂敏感性,容易成为裂纹萌生和扩展的路径^[13,30,31]. 对182-LAS异种焊接接头的研究^[32]表明,该区域具有最高的残余应变值. 这种特殊边界的存在是导致异种焊接接头易发生应力腐蚀开裂的主要原因之一. 但是对内壁包覆层与A508界面的观察(图11)则没有发现Type-I和Type-II晶界,只存在白亮的过渡区.

2.2 显微硬度

焊接件的显微硬度分布如图14所示. 可见,最大显微硬度出现在A508热影响区,约为320 HV. 316L/52Mw, 52Mw/52Mb以及52Mb/A508界面对应3个显微硬度跳跃的区域,其中52Mb/A508界面硬度变化最为剧烈. 316LSS硬度范围为165~

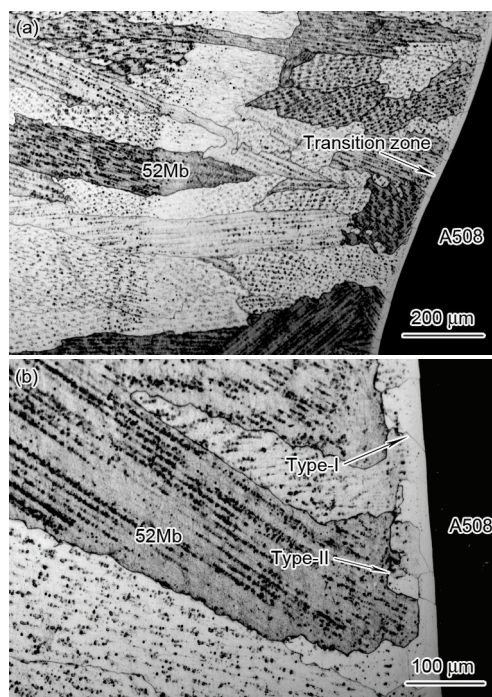


图13 52Mb/A508 熔合线界面组织形貌
Fig.13 OM images of the 52Mb/A508 fusion boundary (a), Type-I and Type-II boundaries (b)

185 HV, 从内壁到外壁, HAZ 硬度均先增大后减小, 最高值均大于 255 HV, 位置距熔合线约 3 mm. 奥氏体不锈钢具有高线膨胀系数以及低的热导率, 与 52M 镍基合金在热性能上的差异容易导致焊接热影响区产生较大的残余应力和变形, 从而引起热影响区显微硬度的升高, 同时也易在焊缝产生裂纹.

焊缝部分硬度变化相对比较平缓, 对接焊缝部分整体硬度稍高于隔离层的硬度, 这可能与隔离层焊后去应力处理以及焊接时无约束有关. 316L/52Mw 以及 52Mb/A508 界面的焊缝一侧为整个焊缝显微硬度最低的区域, 这可能是由界面附近元素迁移使得 Cr, Ni 含量降低, 固溶强化效应减弱导致的^[33].

A508 HAZ 的显微硬度变化分布如图 14d 所示. 由图可知, 从熔合线往母材方向, A508 的显微硬度经历了一个急剧增大后逐渐减小的过程, 其硬度最高处距离熔合线约为 600 μm , 对应于金相组织中粗晶区马氏体和贝氏体的混合组织区域(图 10b). 在热影响区向母材过渡的区域其显微硬度较两侧热影响区和母材都低, 形成一个局部软化的区域. 该区域的局部软化是由于焊接热流对该处局部进行了高温回火, 从而促进了 C 等元素的迁移, 使得母材回火贝氏体的组织软化^[11]. 但是与内壁包覆层接触的 A508 HAZ 显微硬度测量结果低于与 52Mb 堆焊隔

离层接触的 A508 HAZ 区域的结果, 可能和包覆层与隔离层焊接工艺不同有关.

对比内、外壁及中部的显微硬度数据可知, 焊缝深度方向上显微硬度的分布相似. 靠近底部位置 5 的样品的平均显微硬度比内壁位置 1 和外壁位置 8 样品的硬度要高. 这是因为越靠近底焊, 焊接热循环的周次也就越多, 因对硬度的影响也就越大.

2.3 熔合线附近主要合金元素分布

2.3.1 316L/52Mw 熔合线 图 15 所示为焊缝中部位置 4 的 316L/52Mw 熔合线附近主要合金元素 Fe, Cr, Ni, Mo 的分布, 其中图 15a 和 b 分别对应无有未熔合区(UZ)的结果. 由图可知, 在界面附近元素的浓度发生了显著变化, 这种变化是由焊接过程中母材与焊缝的元素浓度梯度造成元素迁移导致的. 但是在 UZ 内各合金元素的质量分数与母材和焊料中各元素的质量分数均不同, 这可能与焊接过程中 UZ 内母材与焊料的熔化温度差异导致部分熔化的母材未充分稀释有关^[34]. 52Mw 一侧过渡区(TZ)内元素成分呈梯度变化, 有 UZ 存在的情况下, TZ 的宽度相对于没有 UZ 的要大. 研究^[28,29]表明, 在界面部分的元素迁移促进了 316L/52Mw 界面区域复杂微结构的形成, 进而对该焊接接头的力学性能以及抗应力腐蚀性能造成影响. 焊缝内壁、中部以

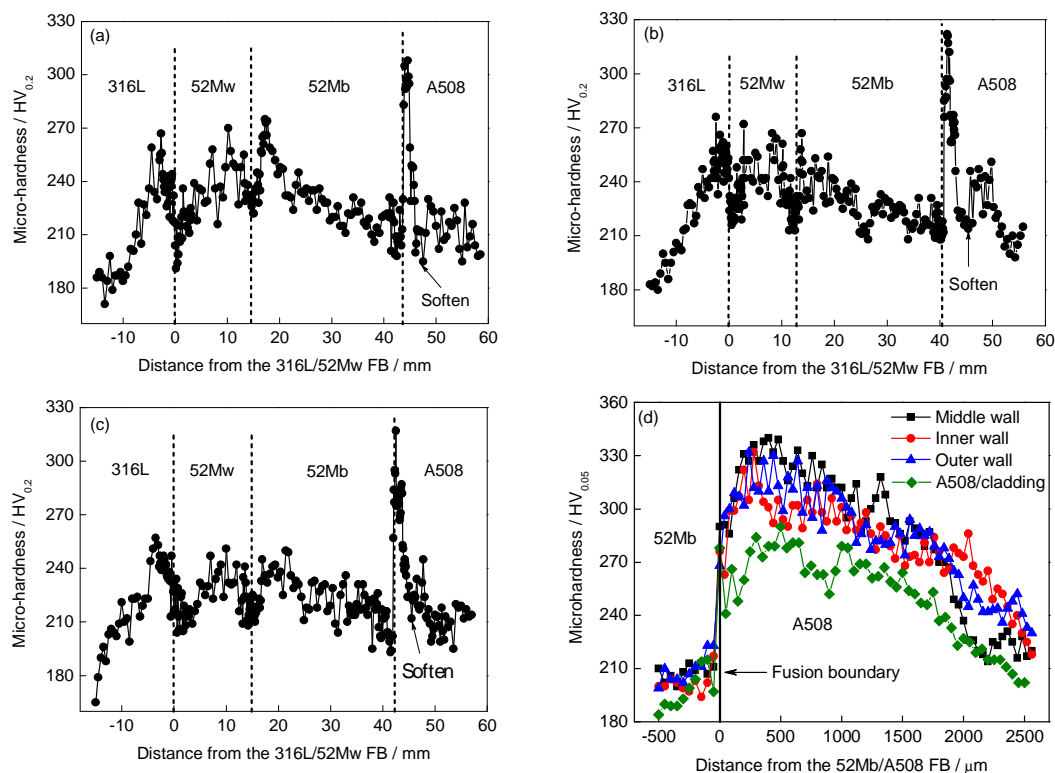


图 14 异种金属焊接接头不同壁厚处的显微硬度分布

Fig.14 Micro-hardness distributions in the joint of inner wall sample in position 1 (a), middle part sample in position 5 (b), outer wall sample in position 8 (c) and HAZ of A508 (d) (FB—fusion boundary)

及外壁的对比结果显示焊缝厚度方向不同位置的 316L/51Mw 界面附近的成分过渡趋势是类似的。

2.3.2 52Mb/A508 熔合线 图 16 所示为焊缝中部位置 4 的 52Mb/A508 熔合线附近主要合金元素 Fe, Cr, Ni 的分布, 其中图 16a 和 b 分别对应无和有 Type-I 和 Type-II 型晶界的结果。由图 16a 可知, 在 52Mb 一侧的过渡区(TZ)内, Fe 含量逐渐增大, 而 Ni, Cr 含量逐渐降低; 在 A508 一侧, 成分变化不是很明显。在有 Type-I 和 Type-II 晶界的区域中, 在 Type-II 晶界和熔合线之间, Fe 元素含量稍有降低, 而 Cr 和 Ni 的含量有一定升高。内壁包覆层与 A508 的熔合线界面附近元素的分布情况与无 Type-I 和 Type-II 型晶界区域的情况相似。同样, 焊缝内壁、中部以及外壁的对比结果显示焊缝厚度方向不同位置的 52Mb/A508 界面附近的成分过渡趋势是相似的。

2.4 熔合线附近晶界类型分布

2.4.1 316L/52Mw 熔合线 316L/52Mw 熔合线 2 侧晶界类型分布的 EBSD 像如图 17 所示, 晶界特征分布 (grain boundary character distribution,

GBCD)如图 18 所示。由图可知, 316LSS 的晶界类型以大角度晶界和重合位置点阵(CSL)晶界为主, 小角度晶界所占的比例很小。从熔合线往母材方向, CSL 晶界的比例逐渐增大, 距焊缝 7 mm 处 CSL 晶界的比例已经大于大角度晶界, 且孪晶界绝大部分都被识别为 CSL 晶界。统计结果还显示 CSL 晶界绝大部分为 $\Sigma 3$ 晶界, 其它类型的 CSL 晶界比例几乎可以忽略。研究^[35-38]表明, CSL 晶界中 $\Sigma 3$ 晶界具有优异的抗 SCC 性能, 316L 热影响区 CSL 晶界的比例明显低于母材, 说明焊接过程对接头部位的抗 SCC 性能产生了不利的影响。52Mw 焊缝部分晶界类型则以大角度晶界为主, 小角度晶界和 CSL 晶界含量相对较少。在焊缝内部部分区域出现大量小“晶粒”, 如图 17a6, b7, c5 所示, 大部分小“晶粒”晶界均被识别为 CSL 晶界。在焊缝厚度方向上, 其分布趋势一致, 且 3 种晶界所占比例也接近。

2.4.2 52Mb/A508 熔合线 52Mb/A508 熔合线 2 侧晶界类型分布取外壁(位置 7)为代表, 其结果如图 19 所示。图 20 为内壁(位置 1)和外壁的 GBCD

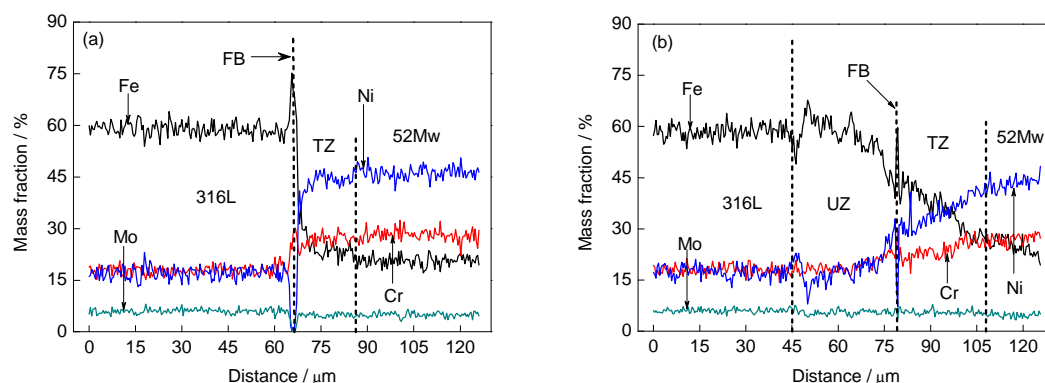


图 15 316L/52Mw 熔合线界面主要合金元素分布

Fig.15 EDS line scan across the 316L/52Mw FB without (a) and with (b) unmixed zone (UZ) of sample in position 4 (TZ—transition zone)

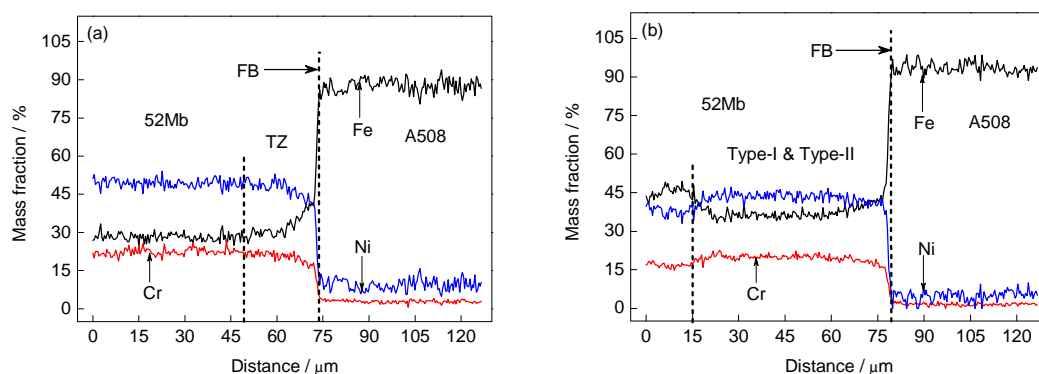
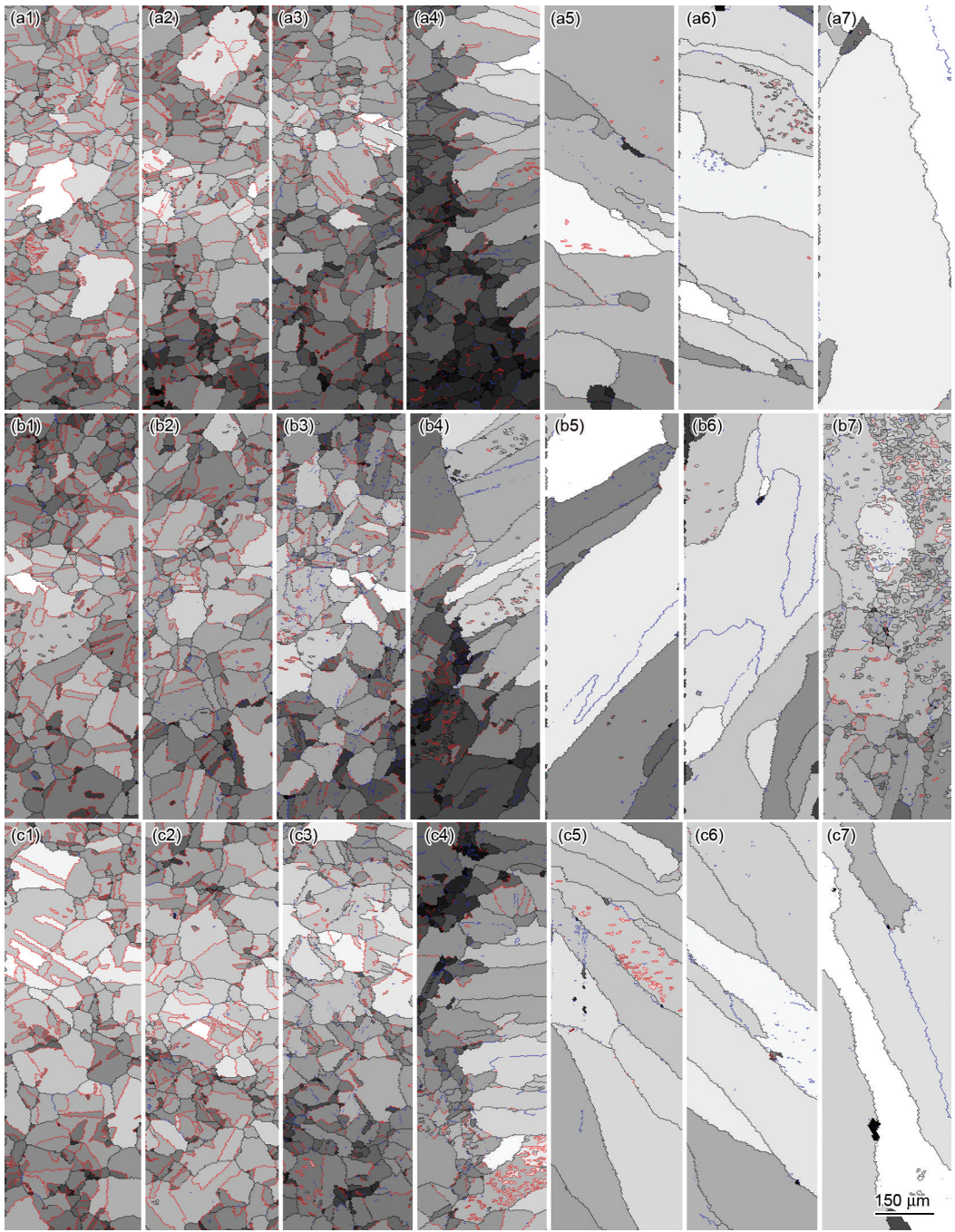


图 16 52Mb/A508 熔合线界面主要合金元素分布

Fig.16 EDS line scan across the 52Mb/A508 fusion boundary without (a) and with (b) Type-I and Type-II boundaries of sample in position 4



Color online

图 17 316L/52Mw 熔合线界面附近晶界类型分布的EBSD 像

Fig.17 EBSD images of grain boundary character distribution of the 316L/52Mw fusion boundary region (a1~a7: inner wall, b1~b7: backing weld, c1~c7: outer wall; 1, 2, 3 indicate the areas of 316L that are 7, 3, 1 mm apart from the fusion boundary, respectively; 4 indicates the fusion boundary area; 5, 6, 7 indicate the areas of 52Mw that are 1, 3, 7 mm apart from the fusion boundary respectively; black, blue and red lines represent the random high angle grain boundary (RGB), low angle grain boundary (LGB) and coincidence site lattice grain boundary (CSL), respectively)

统计结果. 由图可知, 该熔合线2侧晶界类型均以大角度晶界为主, 存在少量小角度晶界, 几乎没有 CSL 晶界. 从熔合线往 A508 基体方向, 晶粒尺寸经历了先变小后变大的过程. 对比内外壁的数据可知

在焊缝深度方向上该界面附近的晶界类型变化趋势一致.

2.5 熔合线附近残余应变分布

核心平均取向差(KAM)值可以定量反映材料应

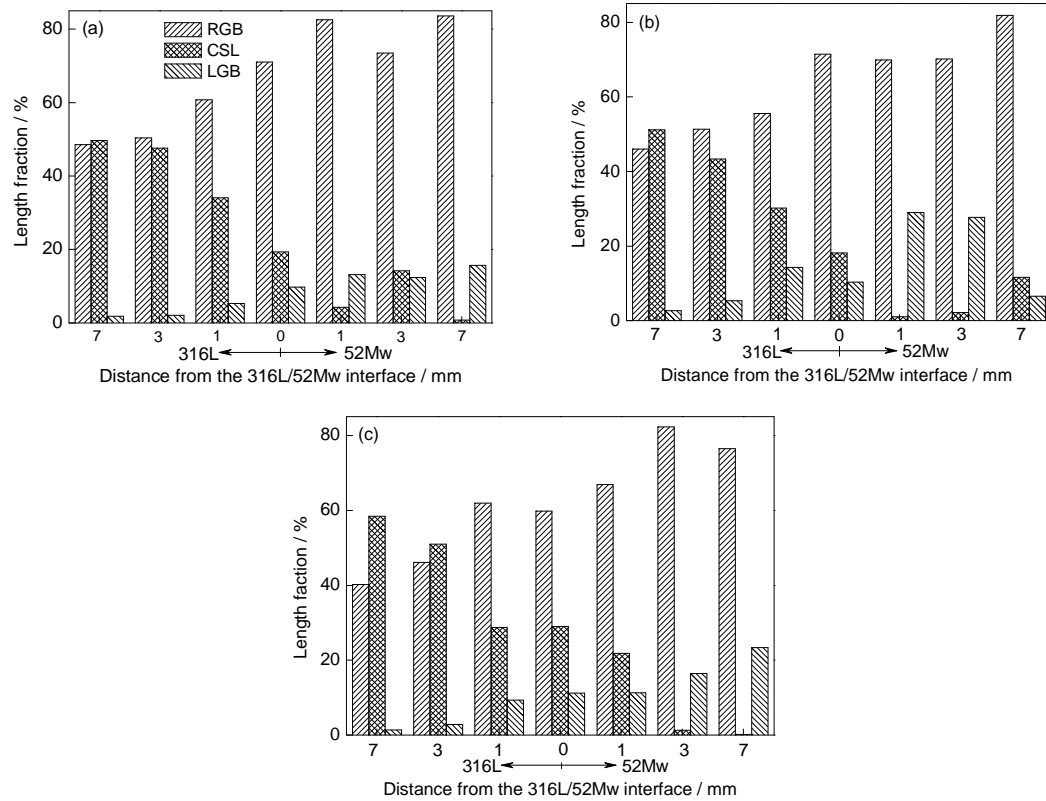
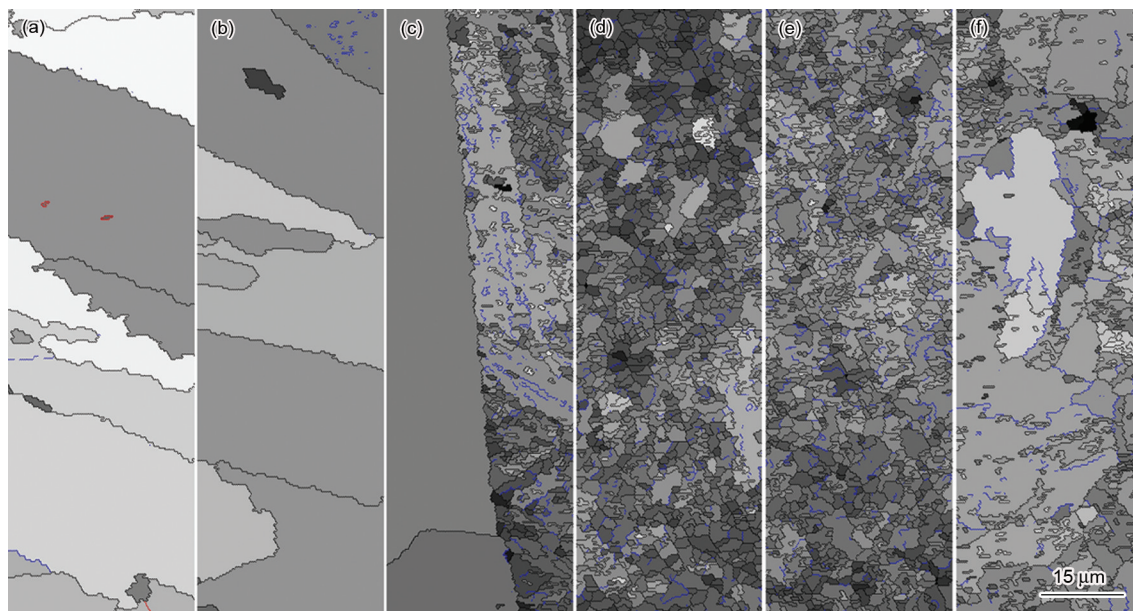


图 18 316L/52Mw 熔合线界面附近晶界特征分布

Fig.18 Grain boundary character distribution (GBCD) across the 316L/52Mw fusion boundary at inner wall (a), back-weld (b) and outer wall (c) regions



Color online

图 19 外壁 52Mb/A508 熔合线界面晶界类型分布图

Fig.19 EBSD images of grain boundary character distributions of the 52Mb/A508 fusion boundary region of sample in position 7 in outer wall (a, b indicate the areas of 52Mb that are 3, 1 mm apart from the fusion boundary; c indicates the fusion boundary area; d, e, f indicate the areas of A508 that are 1, 2, 4 mm apart from the fusion boundary, respectively)

变硬化的程度. 图 21 所示为内壁(位置 1)熔合线界面附近残余应变分布, 其 KAM 值统计结果见图 22.

在 316L/52Mw 熔合线附近, 从熔合线往 316LSS 基体方向焊接件的 KAM 值均先增大后减

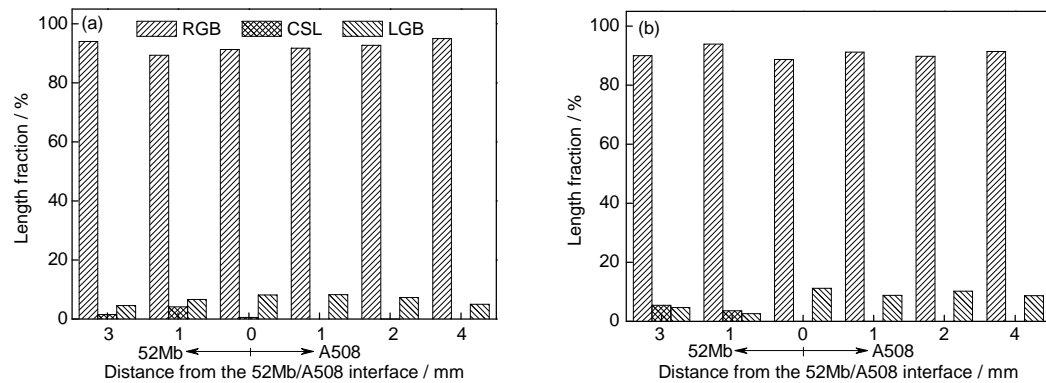
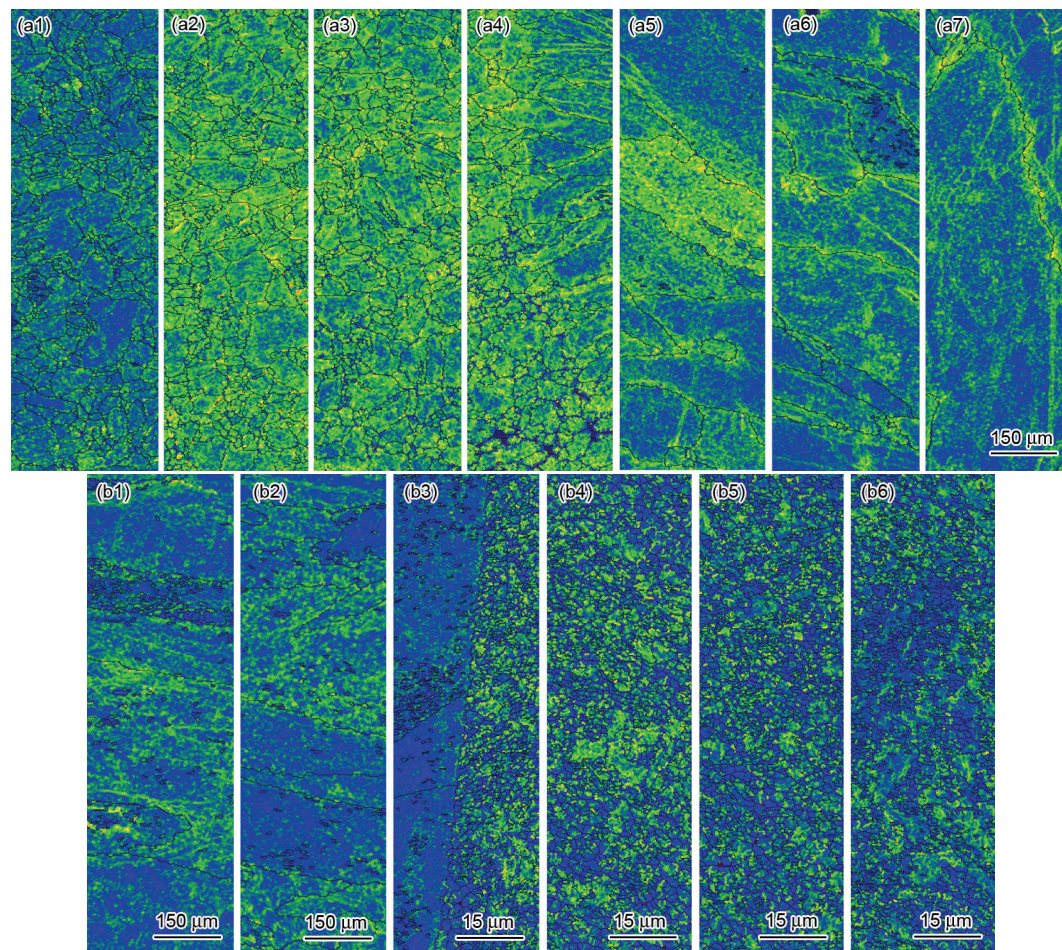


图20 52Mb/A508 熔合线界面附近晶界特征分布

Fig.20 GBCD across the 52Mb/A508 fusion boundary at inner wall (a) and outer wall (b) regions



Color online

图21 内壁熔合线界面附近核心平均取向差(KAM)分布图的EBSD像

Fig.21 EBSD images of Kernel average misorientation (KAM) distributions across fusion boundary of inner wall in position 1 (a1, a2, a3 indicate the areas of 316L that are 7, 3, 1 mm apart from the fusion boundary, respectively; a4 indicates the fusion boundary area; a5, a6, a7 indicate the areas of 52Mw that are 1, 3, 7 mm apart from the fusion boundary, respectively; b1, b2 indicate the areas of 52Mb that are 3, 1 mm apart from the 52Mb/A508 fusion boundary, respectively; b3 indicates the 52Mb/A508 fusion boundary area; b4, b5, b6 indicate the areas of A508 that are 1, 2, 4 mm apart from the 52Mb/A508 fusion boundary, respectively)

小,这是因为焊接热流在熔合线附近的热影响产生局部高温以及较快的升温 and 冷却速率,从而在该处产生最大的残余应变.随着与熔合线距离的增加,

温度的峰值以及升温降温的速率均降低,产生的残余应变也逐渐减小^[27,39].底焊附近该区域的残余应变值较内壁和外壁要高,这与底焊位置经历的热循

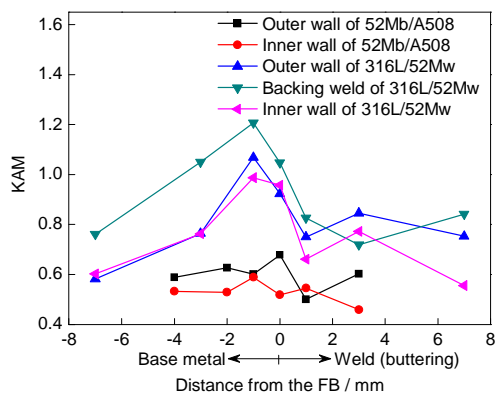


图22 熔合线界面附近核心平均取向差(KAM)分布

Fig.22 Kernel average misorientation (KAM) distribution across fusion boundaries in the DMWJ

环次数最多有关^[40]。焊缝的KAM值较母材的HAZ要低,但内壁和外壁的KAM值从熔合线往焊缝方向经历了先减小后增大最后又减小的过程,而底焊则没有这样的趋势,可能与底焊所扫描区域与内、外壁对应区域在焊缝中的位置不同有关,其中底焊部位距离熔合线7 mm的位置已经靠近52Mw/52Mb熔合线,而内、外壁部位距熔合线7 mm位置则刚好位于焊接熔池的中部。

在52Mb/A508熔合线附近,KAM值的波动范围较小,且平均KAM值要远小于316L/52Mw熔合线附近,这是因为焊接过程中堆焊层的焊接为无约束焊接,因而产生的焊接变形要小。内外壁数据显示变化趋势一致,外壁的KAM值稍高于内壁。

3 结论

(1) 对接焊缝以及堆焊隔离层均为粗大柱状晶组织。在熔合线附近存在一定宽度的过渡区(TZ),316L/52Mw界面发现不连续分布的由小柱状晶组成的未熔合区(UZ),而A508一侧出现不连续的Type-I和Type-II晶界。在未熔合区、Type-I和Type-II晶界区域主要合金成分均发生较大波动。

(2) 该焊接接头的母材A508基体组织为回火贝氏体,热影响区(HAZ)晶粒组织复杂,包括熔合区、粗晶区、细晶区以及回火区4个区域。母材316L由奥氏体组织和大量颗粒状析出物组成,并存在一些孪晶结构,无明显热影响区组织。

(3) 该焊接接头的显微硬度最大值出现在A508的HAZ,3条熔合线界面附近存在显微硬度的跳跃,母材316L不锈钢以及A508的热影响区显微硬度均先增大后减小。

参考文献

[1] Han E H, Wang J Q, Wu X Q, Ke W. *Acta Metall Sin*, 2010; 46:

1379

(韩恩厚,王俭秋,吴欣强,柯伟.金属学报,2010;46:1379)

- [2] Joseph A, Rai S K, Jayakumar T, Murugan N. *Int J Pressure Vessels Piping*, 2006; 82: 700
- [3] Seifert H P, Ritter S, Shoji T. *J Nucl Mater*, 2008; 378: 197
- [4] Wang H T, Wang G Z, Xuan F Z, Tu S T. *Eng Failure Analysis*, 2013; 28: 134
- [5] Peng Q J, Xue H, Hou J, Sakaguchi K, Takeda Y, Kuniya J, Shoji T. *Corros Sci*, 2011; 53: 4309
- [6] Hou J, Peng Q J, Kuniya J, Shoji T, Wang J Q, Han E H, Ke W. *J Mater Sci*, 2010; 397: 109
- [7] Li G F, Congleton J. *Corros Sci*, 2000; 42: 1005
- [8] Meng F J, Wang J Q, Han E H, Shoji T, Ke W. *Acta Metall Sin*, 2011; 47: 839
- (孟凡江,王俭秋,韩恩厚,庄子哲雄,柯伟.金属学报,2011;47:839)
- [9] Bowerman B S, Czajkowski C J, Roberts T C, Neal C. *Mater Charact*, 1999; 43: 347
- [10] Li G F, Li G J, Fang K W, Peng J, Yang W. *Acta Metall Sin*, 2011; 47: 797
- (李光福,李冠军,方可伟,彭君,杨武.金属学报,2011;47:797)
- [11] Wang H T, Wang G Z, Xuan F Z, Liu F Z, Tu S T. *Mater Sci Eng*, 2013; A568: 108
- [12] Choi K J, Kim J J, Lee B H, Bahn C B, Kim J H. *J Nucl Mater*, 2013; 441: 493
- [13] Hou J, Peng Q J, Lu Z P, Shoji T, Wang J Q, Han E H, Ke W. *Corros Sci*, 2010; 52: 3949
- [14] Hanninen H, Brederholm A, Toivonen A. *15th Int Conf on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems-Water Reactors*, Colorado Springs: TMS, 2011: 197
- [15] Sathirathinda N, Gubner R, Pan J, Kivisakk U. *Electrochem Solid-State Lett*, 2008; 11: C41
- [16] Kasper J S. *Acta Metall*, 1954; 2: 456
- [17] Michalska J, Sozanska M. *Mater Charact*, 2006; 56: 355
- [18] Popov A A, Bannikova A S, Belikov S V. *Phys Met Metall*, 2009; 108: 586
- [19] Chun E J, Baba H, Nishimoto K, Saida K. *Mater Charact*, 2013; 86: 152
- [20] Escriba D M, Materna-Morris E, Plaut R L, Padilha A F. *Mater Charact*, 2009; 60: 1214
- [21] Martin D S, Rivera Diaz del Castillo P E J, Peekstok E van del Zwaag S. *Mater Charact*, 2007; 58: 455
- [22] Lai J K L, Meshukat M. *Met Sci*, 1978; 9: 416
- [23] Falata L, Svoboda M, Výrostková A, Petryshynets I, Sopko M. *Mater Charact*, 2012; 72: 15
- [24] Naffakh H, Shamanian M, Ashrafizadeh F. *J Mater Process Technol*, 2009; 209: 3628
- [25] Nelson T W, Lippold J C, Mills M J. *Sci Technol Weld Joining*, 1998; 77: 249
- [26] Rowe M D, Nelson T W, Lippold J C. *Sci Technol Weld Joining*, 1999; 78: 31

- [27] Srinivasan P B, Muthupandi V, Dietzel W, Sivan V. *Mater Des*, 2006; 27: 182
- [28] Hou J, Peng Q J, Shoji T, Wang J Q, Ke W, Han E H. *Acta Metall Sin*, 2010; 46: 1258
(侯 娟, 彭群家, 庄子哲雄, 王俭秋, 柯 伟, 韩恩厚. 金属学报, 2010; 46: 1258)
- [29] Asami K, Sakai T. *Trans Iron Steel Inst Jpn*, 1981; 21: B269
- [30] Nelson T W, Lippold J C, Mills M J. *Sci Technol Weld Joining*, 1999; 78: 329
- [31] Nelson T W, Lippold J C, Mills M J. *Sci Technol Weld Joining*, 2000; 79: 267
- [32] Hou J, Peng Q J, Takeda Y, Kuniya J, Shoji T, Wang J Q, Han E H, Ke W. *J Mater Sci*, 2010; 45: 5332
- [33] Wang H T. *PhD Dissertation*, East China University of Science and Technology, Shanghai, 2013
(王海涛. 华东理工大学博士学位论文, 上海, 2013)
- [34] Naffakh H, Shamanian M, Ashrafizadeh F. *J Mater Process Technol*, 2009; 209: 3628
- [35] Gertsman V Y, Tangri K, Valiev R Z. *Acta Metall Mater*, 1994; 42: 1785
- [36] Gertsman V Y, Bruemmer S M. *Acta Mater*, 2001; 49: 1589
- [37] Lehigh E M, Brennenstuhl A M, Thompson I. *Corros Sci*, 2004; 46: 2383
- [38] Pan Y, Adams B L, Olson T, Panayotou N. *Acta Mater*, 1996; 44: 4685
- [39] Lee H T, Wu J L. *Corros Sci*, 2009; 51: 733
- [40] Qiao D, Zhang W, Pan T Y, Crooker P, David S, Feng Z. *Sci Technol Weld Joining*, 2013; 92: 624

(责任编辑:罗艳芬)